

(51) Int.Cl.<sup>9</sup>

H05K 3/46

識別記号

FI

H05K 3/46

N  
E  
G

審査請求 未請求 請求項の数4 OL (全6頁)

(21) 出願番号 特願平9-246293

(22) 出願日 平成9年(1997) 9月11日

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 大塚 和久

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内

(72) 発明者 有家 茂晴

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内

(72) 発明者 伊藤 豊樹

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内

(74) 代理人 弁理士 若林 邦彦

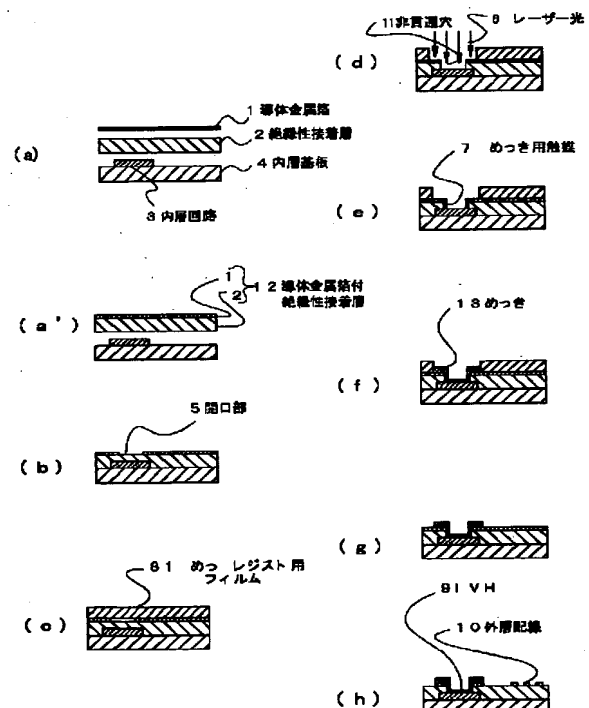
最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 多層配線板の製造法

## (57) 【要約】

【課題】特殊な絶縁材料を用いず、多大な設備投資を必要とせずに配線の高密度化が可能な多層配線板の製造法を提供する。

【解決手段】内層回路3を形成した内層基板4の表面に、絶縁性接着層2と導体金属箔1とをこの順に重ね、加圧加熱して一体化し、IVH9を形成する箇所の、導体金属箔1をエッチング除去して開口部5を形成し、めっきレジスト用フィルム81を貼り、導体金属箔1に形成した開口部5とその周囲に、めっきレジスト用フィルム81の上からレーザー光6を照射して、絶縁性接着層2に、内層回路3が露出するまで非貫通穴11を明け、少なくとも、非貫通穴11内壁の絶縁性接着層2に、めっき用触媒7を付与し、めっきレジスト用フィルム81のない箇所にめっき13を行い、めっきレジスト用フィルム81を除去し、導体金属箔1の不要な箇所をエッチング除去して、外層配線10を形成する工程を含むIVH9を持つ多層配線板の製造法。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】隣接する層間のみを接続するためのIVH(9)を持つ多層配線板の製造方法において、以下の工程を含むことを特徴とする多層配線板の製造法。

a. 内層回路(3)を形成した内層基板(4)の表面に、絶縁性接着層(2)と導体金属箔(1)とをこの順に重ね、加圧加熱して一体化する工程、

b. 導体金属箔(1)と内層回路(3)の電氣的接続を行うIVH(9)を形成する箇所の、導体金属箔(1)をエッチング除去して開口部(5)を形成する工程、

c. 開口部(5)を形成した導体金属箔(1)の表面に、めっきレジスト用フィルム(81)を貼る工程、

d. 導体金属箔(1)に形成した開口部(5)とその周囲に、めっきレジスト用フィルム(81)の上からレーザー光(6)を照射して、絶縁性接着層(2)に、内層回路(3)が露出するまで非貫通穴(11)をあける工程、

e. 少なくとも、非貫通穴(11)内壁の絶縁性接着層(2)に、めっき用触媒(7)を付与する工程、

f. めっきレジスト用フィルム(81)のない箇所にめ

つき(13)を行う工程、

g. めっきレジスト用フィルム(81)を除去する工程、

h. 導体金属箔(1)の不要な箇所をエッチング除去して、外層配線(10)を形成する工程。

【請求項2】以下の工程を含むことを特徴とする請求項1に記載の多層配線板の製造法。

a. 内層回路(3)を形成した内層基板(4)の表面に、絶縁性接着層(2)と導体金属箔(1)とをこの順に重ね、加圧加熱して一体化する工程、

b. 導体金属箔(1)と内層回路(3)の電氣的接続を行うIVH(9)を形成する箇所の、導体金属箔(1)をエッチング除去して開口部(5)を形成する工程、

c. 開口部(5)を形成した導体金属箔(1)の表面に、めっきレジスト用フィルム(81)を貼る工程、

d. 導体金属箔(1)に形成した開口部(5)とその周囲に、めっきレジスト用フィルム(81)の上からレーザー光(6)を照射して、絶縁性接着層(2)に、内層回路(3)が露出するまで非貫通穴(11)をあける工程、

e. 少なくとも、非貫通穴(11)内壁の絶縁性接着層(2)に、めっき用触媒(7)を付与する工程、

f. めっきレジスト用フィルム(81)のない箇所にめ

つき(13)を行う工程、

g. めっきレジスト用フィルム(81)を除去する工程、

h1. 導体金属箔(1)の不要な箇所をエッチング除去して、第1の外層配線を形成する工程、

j. 工程a～工程h1を必要回数繰り返し、工程a～工程hを行う工程。

【請求項3】工程aにおいて、絶縁性接着層(2)と導体金属箔(1)とを重ねることに代えて、これらが一体化した導体金属箔付き絶縁性接着層(12)を用いることを特徴とする請求項1または2に記載の多層配線板の製造法。

【請求項4】以下の工程を追加して貫通穴(14)も同時に設けることを特徴とする請求項1～3のうちいずれかに記載の多層配線板の製造法。

・工程cまたは工程dに貫通穴(14)をあける工程、

10 ・工程eにおいて、貫通穴(14)の内壁にもめっき用触媒を付与する工程、及び、

・工程fにおいて、貫通穴(14)の内壁にもめつき(13)を行う工程。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、隣接する層間のみを接続するための Interstitial Via Hole (以下、IVHという。)を持つ多層配線板の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】多層配線板においては、従来から層間を電氣的に接続する方法としては、貫通穴をあけた後に金属めっきする手法が主流であった。しかし、この方法では貫通穴による配線禁止領域が全層にあるため高密度化の障害となっており、近年は、隣接する層間のみを接続するためのIVHを使用する方式が実用化されてきている。この製造方法としては、特開平4-148590号公報に記載されているように、内層回路基板の表面に感光性を有する絶縁層を形成し、層間接続を行う部分の基板表面の絶縁層にフォトリソグラフ法で非貫通穴をあけ、その穴及び基板表面を金属めっきした後、基板表面の導体をエッチング法により回路形成する方法(フォトビア法)がある。

【0003】また、特公平4-3637号公報に記載されている様に、金属箔と絶縁性接着剤を、内層回路基板の表面に重ねて積層接着し、層間接続を行う部分の基板表面の金属層にエッチング法で穴をあけ、更にレーザー等で非貫通穴をあけ、その穴及び基板表面を金属めっきした後、基板表面の導体をエッチング法により回路形成する方法(レーザー穴あけ法)もある。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】特開平4-148590号公報に記載された方法では、絶縁層にはフォトリソ性、絶縁性、めっき金属との接着性、基板への塗膜形成性等の多くの特性が求められることになるが、現在、全てを満たすものは少なく、また、現在の設備だけで行うこともできず、何らかの設備的な投資が必要となる。例えば、絶縁性とフォトリソ性を両立するために、極性基の少ない材料系を選択するとフォトリソ工程の現像においては、溶剤現像を採用しなければならず、環境保護の

観点から塩素系溶剤が使えないため、可燃性溶剤を用いて完全防爆型の装置が必要となる。また、特公平4-3637号公報に記載された方法では、金属箔上に更に金属めっきを付けるために導体回路となる金属層の厚みが厚く、エッチング法で回路を形成する場合には、回路の微細化に限界がある。

【0005】本発明は、特殊な絶縁材料を用いず、多大な設備投資を必要とせず配線の高密度化が可能な多層配線板の製造法を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明の多層配線板の製造法は、隣接する層間のみを接続するためのIVH9を持つ多層配線板の製造方法において、以下の工程を含むことを特徴とする。

- a. 図1(a)に示すように、内層回路3を形成した内層基板4の表面に、絶縁性接着層2と導体金属箔1とをこの順に重ね、加圧加熱して一体化する工程、
- b. 図1(b)に示すように、導体金属箔1と内層回路3の電気的接続を行うIVH9を形成する箇所の、導体金属箔1をエッチング除去して開口部5を形成する工程、
- c. 図1(c)に示すように、開口部5を形成した導体金属箔1の表面に、めっきレジスト用フィルム81を貼る工程、
- d. 図1(d)に示すように、導体金属箔1に形成した開口部5とその周囲に、めっきレジスト用フィルム81の上からレーザー光6を照射して、絶縁性接着層2に、内層回路3が露出するまで非貫通穴11をあける工程、
- e. 図1(e)に示すように、少なくとも、非貫通穴11内壁の絶縁性接着層2に、めっき用触媒7を付与する工程、
- f. 図1(f)に示すように、めっきレジスト用フィルム81のない箇所にめっき13を行う工程、
- g. 図1(g)に示すように、めっきレジスト用フィルム81を除去する工程、
- h. 図1(h)に示すように、導体金属箔1の不要な箇所をエッチング除去して、外層配線10を形成する工程。

【0007】多層化するには、以下のようによって可能である。

- a. 内層回路3を形成した内層基板4の表面に、絶縁性接着層2と導体金属箔1とをこの順に重ね、加圧加熱して一体化する工程、
- b. 導体金属箔1と内層回路3の電気的接続を行うIVH9を形成する箇所の、導体金属箔1をエッチング除去して開口部5を形成する工程、
- c. 開口部5を形成した導体金属箔1の表面に、めっきレジスト用フィルム81を貼る工程、
- d. 導体金属箔1に形成した開口部5とその周囲に、め

射して、絶縁性接着層2に、内層回路3が露出するまで非貫通穴11をあける工程、

- e. 少なくとも、非貫通穴11内壁の絶縁性接着層2に、めっき用触媒7を付与する工程、
- f. めっきレジスト用フィルム81のない箇所にめっき13を行う工程、
- g. めっきレジスト用フィルム81を除去する工程、
- h1. 導体金属箔1の不要な箇所をエッチング除去して、第1の外層配線を形成する工程、
- j. 工程a～工程h1を必要回数繰り返して、工程a～工程hを行う工程。

【0008】また、工程aにおいて、絶縁性接着層2と導体金属箔1とを重ねることに代えて、これらが一体化した導体金属箔付き絶縁性接着層12を用いることもできる。

【0009】さらに、以下の工程を追加して、貫通穴14も同時に設けることができる。

- ・工程cまたは工程dに貫通穴14をあける工程、
- ・工程eにおいて、貫通穴14の内壁にもめっき用触媒7を付与する工程、及び、
- ・工程fにおいて、貫通穴14の内壁にもめっき13を行う工程。

さらに、工程dにおいて、貫通穴14の周囲のめっきレジスト用フィルム81を除去すれば、図2に示すような、貫通穴14を有する多層配線板とすることもできる。

【0010】

【発明の実施の形態】

- (工程a) 本発明で使用する導体金属箔1は、エッチング法で配線形成できるものであれば使用可能であり、一般的には銅箔が好ましい。また、微細配線を形成するために金属箔の厚みはできるだけ薄いものが好ましいが、銅箔が単層の場合には、取扱性から考えると9μmから18μmが良い。また、ライン/スペースが50μm/50μm未満の極めて微細な配線を形成する場合には、銅箔の厚さは更に薄いものが望ましく、このような場合には3～9μmの極薄銅箔とその極薄銅箔の強化層からなる複合箔を使用する。この強化層は加圧加熱積層後に、引き剥がしによって剥離するか、もしくはエッチングによって除去する。引き剥がし可能な複合箔の例としては、70μm厚さの銅箔と9μmの極薄銅箔からなるピーラブル銅箔(古河サーキットホイル株式会社製、商品名)がある。エッチングによって強化層が除去できるものとして、アルミニウム箔に5μmの極薄銅箔を複合化したアルミニウム箔をエッチングで除去する複合箔(三井金属工業株式会社製)等がある。

- 【0011】本発明で用いる、絶縁性接着層2の樹脂としては、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂などの樹脂が使用できる。この絶縁性接着層2は、内層基板4に加圧加熱して積層後、レーザー光6を照射し

て層間接続のための穴をあけるので、層間接続の直径を越える無機質繊維がこの絶縁性接着層2に含まれていると、レーザー加工に要する時間が長くなり生産性が著しく低くなるため、この絶縁性接着層2にはレーザー光6であける穴の直径以上の長さの無機繊維を含まないことが望ましい。絶縁性接着層2としては、エポキシやポリイミド類を成分として含むものであり、例えば、分子量10万以上の高分子量エポキシ重合体を主成分としたエポキシ系接着フィルムとして、AS-3000E（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。変成ゴムを添加したエポキシ系接着フィルムとしてGF-3500（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。ポリイミド系接着フィルムとしてはAS-2500（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。直径が0.1~6 $\mu\text{m}$ で長さが約5~100 $\mu\text{m}$ の繊維状物質をエポキシ系樹脂中に分散させたエポキシ系接着剤フィルムとして、AS-6000E（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。これらの絶縁性接着層2は引き剥がし可能なフィルム上に、熱硬化性樹脂を溶剤に溶解したワニス塗布した後、溶剤分を乾燥することによって得られる。この絶縁性接着層2の厚さは内層回路3の厚さと関係しており、内層回路3の充填性の点から、少なくとも内層回路3の厚さ以上であることが必要である。内層回路3の厚さが12 $\mu\text{m}$ の場合には、25 $\mu\text{m}$ 程度の厚さのものにする。内層回路3の厚さが5 $\mu\text{m}$ 程度の薄さであれば、10 $\mu\text{m}$ 程度でも内層回路3を充填することができる。一般にはこの絶縁性接着層2の厚さは10~500 $\mu\text{m}$ の範囲である。

【0012】導体金属箔1と絶縁性接着層2を重ねることに代えて用いることのできる、導体金属箔1と一体化した導体金属箔付絶縁性接着層12は、導体金属箔1の表面に上述した引き剥がし可能なフィルムに絶縁性接着剤を塗布したものを貼り合わせ、その後フィルムを引き剥がすことで得られる。引き剥がし可能なフィルムは、有機フィルムが好適であり、接着剤を塗布する有機フィルムとしては、塗布後に溶剤分を加熱乾燥除去するために、この加熱温度での耐熱性が必要である。このような有機フィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、4メチルペンテン1ポリマー、ポリフッ化エチレン等が使用できる。これらのフィルムの厚さは5 $\mu\text{m}$ 以上であり、取り扱い性の点からはある程度の厚さが必要である。このような点から望ましい厚さは10~70 $\mu\text{m}$ である。

【0013】また、この導体金属箔付絶縁性接着層12は、絶縁性接着剤樹脂を溶剤に溶解したワニスを、直接金属箔に塗布することでも得られる。このような材料としては、例えば、分子量10万以上の高分子量エポキシ重合体を主成分とした銅箔付エポキシ系接着フィルムとして、MCF-3000（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。また、直径が0.1~6 $\mu\text{m}$ で長さが約

5~100 $\mu\text{m}$ の繊維状物質をエポキシ系樹脂中に分散させた銅箔付エポキシ系接着剤フィルムとして、MCF-6000E（日立化成工業株式会社製、商品名）がある。

【0014】本発明で使用する内層基板4としては、紙基材やガラス基材を含むエポキシ系、フェノール系、ポリイミド系の片面銅張積層板が使用できる。また、これらの基材と樹脂からなる両面銅張積層板が使用される。これらの基材を使用してエッチング法やめっきとエッチングの両方を用いて内層回路3を形成する。また、紙基材やガラス基材を含むエポキシ系、フェノール系、ポリイミド系基板にアディティブ法で導体パターンを形成したものも使用できる。また、金属基板やセラミック基板等の表面に導体パターンを形成したものも使用できる。内層基板4がその両面に回路を形成した両面回路基板の場合には、層間接続穴は導電性ペーストまたは絶縁性樹脂で充填した両面回路基板を使用する。

【0015】この内層基板4に絶縁性接着層2と導体金属箔1をこの順に重ね、加圧加熱して一体化する条件は、使用する樹脂に依存するが、一般には160~280℃の加熱温度範囲で、圧力は一般に1~50MPaの範囲である。

【0016】（工程b）導体金属箔1に設ける開口部5の穴径は特に限定するものではなく、基板の高密度化の観点から小さいほど良いが、エッチング法での工程能力やめっき付まわり性等から考慮して、50 $\mu\text{m}$ 以上が好ましい。

【0017】（工程c）このようにして開口部5を形成した導体金属箔1の表面に、めっきレジスト用フィルム81として、粘着剤付きのフィルムを貼り付ける。用いるフィルムは後工程の酸やアルカリ溶液に侵されにくい、ポリエチレンやポリプロピレン、ポリエステルのようなフィルムが望ましい。フィルムには一例として、H-5310フィルム（日立化成工業株式会社製、商品名）があり、ホットロールラミネータを用いて貼り付けることが好ましい。

【0018】（工程d）開口部5に、めっきレジスト用フィルム81の上から照射するレーザー光としては、エキシマレーザー、炭酸ガスレーザー等があるが、導体金属箔1以外の樹脂層を選択的に加工しやすいこと、加工速度が早くメンテナンスの容易な炭酸ガスレーザーが好適である。レーザー穴あけでは、開口部5の直径より大きなビーム径のレーザー光を照射することで、導体金属箔1の開口部5と同一の場所の絶縁性接着層2に同一の直径の穴をあけて、内層回路3が露出するまで非貫通穴11をあけることができ、めっきレジスト用フィルム81に開口部5を含む周囲にまで穴をあけることができる。この時のレーザー加工条件は、絶縁性接着剤層の種類により変化するため、予め実験的に最適条件を選択する。

【0019】(工程e)非貫通穴11の内壁の絶縁性接着層2に、付与するめっき用触媒7は、一般にシーディングと呼ばれている微細金属粒子を析出させる方法や、導電性の皮膜を形成する方法、例えば、DE3806884C1号公報に記載されているように、穴部分の樹脂部分に対し、異原子として窒素又は硫黄を有する5又は6員の複素環基からなるモノマーを吸着させた後、酸化剤により重合させることで、導電性ポリマー層を形成する方法等がある。本発明においては、穴内壁と穴近傍のみをめっきするため、短い工程で短時間に処理可能な電気めっきを併用できる後者の方法が好ましい。また、めっき用触媒7及び金属めっきと穴内部の樹脂層との密着強度を上げて接続部分の信頼性を向上させるために、めっき用触媒付与工程の前に穴内部の樹脂層表面を酸化処理するデスミア工程を追加することができる。

【0020】(工程f)穴あけした部分にめっき13を行い、内層回路3と導体金属箔1とを接続するIVH9を形成する方法としては、特に限定するものではなく、通常のプリント基板で行われる無電解めっき又は電気めっき等が適用可能である。

#### 【0021】

##### 【実施例】

##### 実施例1

導体金属箔付絶縁性接着層12として、銅箔厚さが12 $\mu\text{m}$ で、樹脂層厚さが50 $\mu\text{m}$ 、分子量10万以上の高分子量エポキシ重合体を主成分としたエポキシ系接着フィルムであるMCF-3000E(日立化成工業株式会社製、商品名)、内層基板4として、厚さが0.2mmで回路加工済のエポキシ系片面銅張積層板を準備した。次に、これらを重ね合わせて、圧力2.5MPa、温度170℃、60分間、加圧加熱して多層配線板を作製し、エッチング法で表面の銅箔層に直径0.1mmの開口部5を形成した。次に、この多層配線板の表面に粘着剤付ポリエチレンフィルムH-5310(日立化成工業株式会社製、商品名)をラミネータにより貼り付けた。次に、炭酸ガスレーザーを開口部5の直径よりも0.1mm広い範囲に照射して内層基板4の内層回路3まで届く非貫通穴11をあけた。次に、めっき用触媒7として、DMS-E処理液(ブラスベルク・オーベルフレヒエンテヒニーク・ゲー・エム・ペー・ハー社製、商品名)によって、非貫通穴11の絶縁性接着層2に導電性の皮膜を形成した。次に、非貫通穴11内部と周囲に12 $\mu\text{m}$ の厚さの電気めっきを行い、めっきレジスト用フィルム81を剥離除去した。更に、新たにエッチングレジストを形成して、外層配線10の形状にマスクパターンを用いて露光、現像し、エッチング法で最外層の回路を形成し2層の基板を作製した。

##### 【0022】実施例2

導体金属箔1として、強化層としての70 $\mu\text{m}$ 厚さの銅箔と9 $\mu\text{m}$ の極薄銅箔からなるピーラブル銅箔(古河サ

ーキットホイル株式会社製、商品名)、絶縁性接着層2として、樹脂層が厚み70 $\mu\text{m}$ のエポキシ系接着剤フィルムとしてAS-6000E(日立化成工業株式会社製、商品名)、内層基板4として、厚さが0.2mmで回路加工済のエポキシ系両面銅張積層板を準備した。次に、内層基板4の両面にAS-6000E(日立化成工業株式会社製、商品名)及びピーラブル銅箔(古河サーキットホイル株式会社製、商品名)をこの順に重ね合わせて、圧力2.5MPa、温度170℃、60分間、加圧加熱して多層配線板を作製した。次に、強化層である70 $\mu\text{m}$ 厚さの銅箔を引き剥がした後、エッチング法で表面の銅箔層に直径0.1mmの開口部5を形成した。次に、この多層配線板の表面に粘着剤付ポリエチレンフィルムH-5310(日立化成工業株式会社製、商品名)をラミネータにより貼り付けた。次に、炭酸ガスレーザーを開口部5の直径より0.1mm広い範囲に照射して内層基板の内層回路3まで届く非貫通穴11をあけた。次に、めっき用触媒として、DMS-E処理液(ブラスベルク・オーベルフレヒエンテヒニーク・ゲー・エム・ペー・ハー社製、商品名)によって、非貫通穴11の絶縁性接着層2の部分に導電性の皮膜を形成した。次に、非貫通穴11とその周囲に12 $\mu\text{m}$ の厚みの電気めっきを行い、めっきレジスト用フィルム81を剥離除去した。更に、新たにエッチングレジストを形成して、外層配線10の形状にマスクパターンを用いて露光、現像し、エッチング法で最外層の回路を形成し、4層の多層基板を作製した。

##### 【0023】実施例3

実施例2の基板を内層基板4として、更に両面に絶縁性接着層2と銅箔層を積み上げて、その他の材料は同じものを用い、実施例2と同じ工程を繰り返して、6層の多層基板を作製した。

##### 【0024】比較例1

実施例1において、開口部5を形成した後、めっきレジスト用フィルム81を形成せずにレーザー穴加工をした。その後、実施例1と同様の回路を形成した。

【0025】以上の実施例及び比較例で作製した基板を比較評価した。各基板に設けた配線パターンで、配線ルールがライン/スペース=50 $\mu\text{m}$ /50 $\mu\text{m}$ の部分については、実施例1、2、3共に短絡、断線の不良がなかったが、比較例1においては短絡と断線不良が多発した。なお、直列にIVHを100個接続した試験片で、信頼性試験の一つであるホットオイル試験(260℃ホットオイル10秒ディップと室溫水中10秒ディップを繰り返して行うサイクル試験)を50サイクル行ったところ、何れの試験片も抵抗値の変化は、10%以内で良好であった。

##### 【0026】

【発明の効果】以上に説明したように、本発明によつて、高密度な微細配線が可能な多層配線板の製造が可能

になる。また、レーザーによって非貫通穴をあけるために直径が100 $\mu$ mレベルの微小径が加工できる。更に、絶縁性接着剤層は多層プリント基板用に使用される一般的な絶縁材料が使用できるため、用途に応じて絶縁材料を使い分けることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】(a)～(h)は、本発明の一実施例を説明するための各工程における断面図であり、(a')は、本発明の他の実施例の一工程における断面図である。

【図2】本発明のさらに他の実施例の方法によって製造された多層配線板を示す断面図である。

#### 【符号の説明】

1. 導体金属箔

2. 絶縁性

接着層

3. 内層回路

4. 内層基

板

5. 開口部

6. レーザ

光

7. めっき用触媒

81. めっ

きレジスト用フィルム

9. IVH

10. 外層

配線

11. 非貫通穴

12. 導体

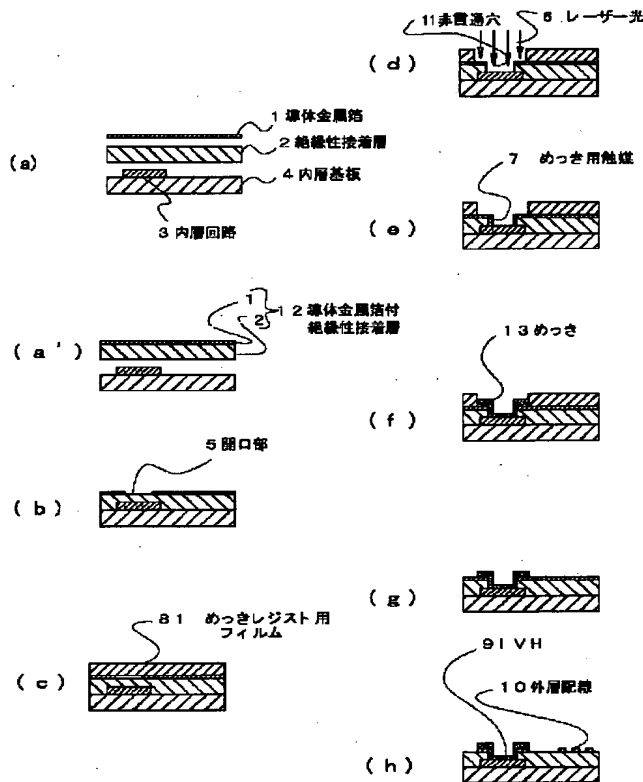
金属箔付絶縁性接着層

13. めっき

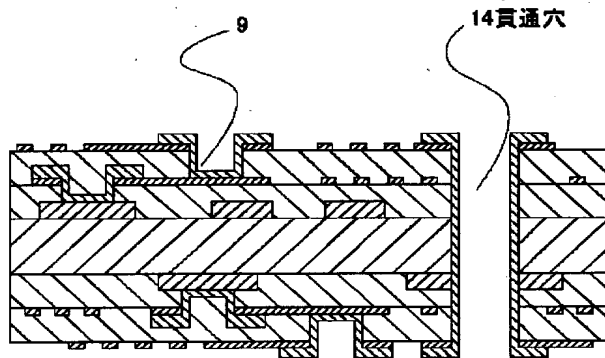
14. 貫通

穴

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 浦崎 直之

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 藤本 大輔

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内

(72)発明者 ▲つる▼ 義之

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内